

### IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Applicant: N. TAKANO et al.

Group Art Unit: 1712

Serial No: 09/973,719

Examinar: M. J. Feely

Filad

: October 11, 2001

For

: Incombustible resin composition, prepred, Laminated

PLATE, METAL-CLAD LAMINATED PLATE, PRINTED WIRING BOARD

AND MULTI-LAYER PRINTED WIRING BOARD

### DECLARATION OF NOZOMU TAKANO UNDER 37 C.F.R. § 1.131

Commissioner of Patents and Trademarks
Washington, DC 20231

Siz :

- I, Nozomu Takano, being duly warned, declare that:
- I. I am an inventor of the subject matter claimed in the instant U.S. Appln. No. 09/973,719 ("the '719 application"), which is rejected in the Office Aedon mailed November 21, 2002 ("the rejection").
- 2. The '719 application claims priority of Japanese Appln. No. P2000-313720 ("the JP '720 application"), filed October 13, 2000.
- 3. Prior to September 15, 2000, I was a member of a group that was in passession of the incombustible resin composition that the rejection asserts is disclosed in U.S. Patent No. 6,303,681 to Furukawa et al. I know this because prior to September 15, 2000, the group had reduced to practice and documented an incombustible resin composition comprising a silicone

#### P21547.A04

oligomer, a resin material, and a metal hydrate, wherein the metal hydrate comprises at least 20% by weight of the solids of the resin composition.

- 4. Exhibit A, attached hereto, is a copy of a Draft Specification, which was prepared before September 15, 2000.
- 5. Exhibit B, attached hereto, is a copy of the computer "file property" (and an English language translation thereof) bearing a date of creation before September 15, 2000, with respect to the electronic storage of the Draft Specification. Exhibit B is partially reducted with respect to dates.
- 6. The Draft Specification discloses, inter alia, an incombustible resin composition including the same twenty four experimental examples that are disclosed in the IP '720 application.
- 7. Exhibit C, attached hereto, is a partial English language translation of the Draft

  Specification (e.g., not including a translation of the examples, which are the same as those in the

  IP '720 application).
- 8. Exhibit D, attached hereto, is a letter of request ("the letter") for a patent application from our group to our patent attorney. Before September 15, 2000, the letter was forwarded to the attorney with the Draft Specification as an attachment.
- 9. English language translations of certain portions of the latter are set forth adjacent to the corresponding Japanese text. Exhibit D is partially redacted.
- 10. I hereby declars that all statements made herein of my own knowledge are true and that all statements made on information and helief are believed to be true, and further that these

### P21547.A04

statements were made with the knowledge that willful false statements and the like so made are punishable by fine or imprisonment, or both, under Section 1001 of Title 18 of the United States Code, and that such willful false statements may jeopardize the validity of the application or any patent issuing thereon.

Nozomu TAKANO

Date

# **EXHIBIT A**

[虚類名] 要約費

[遊松]

(目的) 現境調和型印刷配製板の対応を目的として、基板のハロゲンフリー化を図る。

**【楊成】 無機充塡剤として金瓜水和物を川い、金瓜水和物の表面をシリコーン蛋合体で処理すことにより、ハロゲンフリーでも疑燃性が循保できかつ耐熱性に優れた樹凮板川樹脂組成物が得られる。** 

(選択図) 無し

praft specification G-00.00c.

(背類名) 明細書

-,-

[発明の名称] - 臭楽化合物を含まない観燃性樹脂組成物及びそれを川いた铅層板, 印刷配線(

[特許請求の範囲]

【前求項1】 10体視%以上の金原水和物とシリコーン重合体を用いることを特徴とする以 株化合物を含まない鍵燃性樹脂和成物及びそれを用いた視層板、印刷配線板。

【翻求項2】 金周水和物として予めシリコーン肌合体で表面処理した金周水和物を用いることを特徴とする耐採項1に記載の臭素化合物を含まない顕微性樹脂剤成物及びそれを用いた铅層板、印刷配数板。

【前来項3】 予めシリコーン重合体を含有する処理溶液に金属水和物を配合・股件した後、 樹脂和成物を配合することを特徴とする以案化合物を含まない難燃性樹脂和成物及びそれを川 いた積層板、印刷配線板が求項1に配破の具業化合物を含まない難燃性樹脂和成物及びそれを 用いた積層板、印刷配線板。 「翻求項4] 金属水和物として水酸化アルミニウムを含むことを特徴とする耐米項1.乃至3に記載の臭素化合物を含まない顕燃性樹脂組成物及びそれを用いた前層板、印刷配板板。 「翻求項5] 金属水和物として水酸化マグネシウムを含むことを特徴とする間求項1.乃至3に配帳の臭業化合物を含まない鑑燃性樹脂組成物及びそれを用いた前層板、印刷配線板。

「静来項6】 金周水和物として水酸化カルシウムを含むことを特徴とする静泉項1万至3に記載の具案化合物を含まない雖然性樹脂組成物及びそれを用いた抗層版、印刷配数板。

【削求項7】 金周水和物が水酸化アルミニウムであることを特徴とする部状項1乃至3に記載の契案化合物を含まない鍵盤性問順組成物及びそれを用いた税局板, 印刷配線板。

【が求項8】 水酸化アルミニウムの平均粒発が5μm以下であることを特徴とする請求項1 乃至4,7に記載の具業化合物を含まない蜒燃性樹脂組成物及びそれを用いた積層板,印刷配 約56 【前求項9】 表面処理剤となるシリコーン重合体の未端が金属水和物の表面と反応可能なシラノール基を有していることを特徴とする前来項1乃至8に記載の災業化合物を含まない難燃生機脂組成物及びそれを用いた積層板、印刷配象板。

【柳来項10】 シリコーンオリゴマのシロキサン散り返し単位が2~100であることを特徴とする請求項1乃至9に記載の臭素化合物を含まない顕燃性樹脂組成物及びそれを用いた積

图板, 印刷配数板。

-,-

(間求項11] シリコーン近合体がフェニル基を含有していることを特徴とする間求項1乃至10に記載の臭案化合物を含まない塑燃性協脂組成物及びそれを用いた組層板,印刷記載板。 目前求項12] シリコーン近合体の各シロキサン単位に各々1つ以上のフェニル基を含有することを特徴とする前求項1乃至10に記載の臭案化合物を含まない難燃性樹脂組成物及びそれを用いた積層板,印刷配線板。

[発明の詳細な説明]

[0000]

[産業上の利用分野]

本発明は、各種電子材料に用いられる及業化合物を含まなや難燃性樹脂和成物及び印刷配線 板用等の金属指張り材層板や多層印刷配線板に用いられる積層板・印刷配線板に関する。

[0002]

[従来の技術]

各種電子機器等に用いられる多くの樹脂組成物には、火災等に対する安全性を確保するため に難燃性が付与されている。頻燃化には様々な手法が用いられているが、その優れた顕燃性か らこれまで具業化合物が広く用いられてきた。しかしながら、地球規模で環境機関に関する問 題意離が高まるなか、焼却時等に腐食性の臭薬だけでなく非性の高い化合物を形成する可能性 がある臭薬化合物に代わる鍵燃システムが検討されている。一方、奥装師品のはんだ材料に関 しても、従来 5n-7b 系が主に使用されているが、廃棄処理時等に土壌等を汚染する可能性があ る Pb を用いないはんだ材料の検討も進んでいる。はんだ材料の Pb フリー化に関する報告等を 見ると融点は上界することが予想されており、これに伴ってリフロー温度も上界する可能性が こうした状況において、今後の電子材料に用いられる樹脂組成物には、臭業化合物を用いないことと同時にこれまで以上に高い耐熱性が要求される。

003

以業化合物に代わる頻磁化の手法としては、従来からリンや窒素化合物の添加や樹脂骨格への期入等が行われている(特別平11-124489号,特別平11-199753号)。しかしながら、リンや窒素により頻燃性を確保するためにはある程度の引を配合する必要があり、これによって吸水率の増加や耐熱性の低下等を引き起こす問題があった。このため、リンや窒されたよって吸水率の増加や耐熱性の低下等を引き起こす問題があった。このため、リンや窒

素の導入型の低減を目的に、金属水和物を併用する方法がある。しかしながら、金属水和物は 燃焼時に冷却効果を発現する水を多くトラップしているため、ある程度の肌以上配合すると耐 熱性が急激に低下する問題がある。これは、金属水和物が水をリリースする温度がはんだの浴 強温度よりも低いことに起因しており、今後溶磁温度が更に高くなることが予想されている Pb フリーのはんだではより顕著になると思われる。

[0004]

「発明が解決しようとする概題」

金属水和物を用いて耐熱性を向上させる手法として、水をリリースする温度が比較的高い(約340℃)の水酸化マグキシウムを用いる方法がある(特開平11-181305号)が、水酸化マグキシウムは耐酸性に劣るという問題がある。また、金属水和物の表面にシラン処理を施す方法もあるが(特開平11-181380号,特開平11-217467号)、金属水和物の分散性の向上や引環造度や伸びの向上等を目的としており、シラン処理剤としてはシラン化合物モノマが使用されている。シラン化合物モノマでは、モノマ自体の耐熱性が低いことや金属水和物表面への処理効率が低いことも有り、金属水和物の耐熱性の向上は認められない。

[0000]

本発明は、金属水和物とシリコーン近合体を用いることで上記従来技術の問題点を解消し、 具素化合物を用いずに離燃性樹脂組成物及びこれを用いた積層板、印刷配線板を提供するもの コナナ

[0000]

[概型を解決するための手段]

本発明は、金属水和物とシリコーン重合体を用いて反案化合物を含まない顕燃性樹脂組成物 及びこれを用いた積層板、印刷配線板である。以下、本発明について搭述する。

[0007]

本発明で用いる金属水和物は特に限定されず、例えば水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、水酸化カルシウム等の従来より疑惑性樹脂組成物に使用されている公知のものを使用することができる。また、これら金属水和物とその他の無機先填剤を併用することもできる。併用する無機先填剤の値類や形状は、特に限定するものではなく、例えば炭酸カルシウム、アルミナ、酸化チタン、マイカ、炭酸アルミニウム、ケイ酸マグネシウム、ケイ酸アルミニウム、シリカ、ガラス短繊維やホウ酸アルミニウムや炭化ケイ薬等の各種ウィスカ等が用いられる。

さらに、これらを数領別併加しても良い。無機充塡剤の配合固は、金周水和物が10体積%以上となる範囲内であれば特に限定するものではない。

### 0 0 8 3

本発明におけるシリコーン近合体は、2官値性シロキサン単位(R2S1O<sub>1/2</sub>),3官能性シロキサン単位(RS1O<sub>1/2</sub>),3官能性シロキサン単位(RSiO<sub>3/2</sub>)(式中,Rは有機基であり、シリコーン重合体中のR基は互いに同一であってもよいし、異なっていてもよい。)及び4官他性シロキサン単位(SiO ま/2)から選ばれる少なくとも1種類のシロキサン単位を含有し、重合度は2~700が好ましい。さらに好ましい重合度は2~100が存ましい。さらに好ましい重合度は2~100が存ましい。さらに好ましい重合度は2~100が存ましい。さらに好ましい重合度は2~100が存ました。さらに好ましい正合度は2~100が存まして。さらに好ましいである。ここで、正合度は、その正合体の分子面(低重合度の場合)又はゲルバーミエーションクロマトグラフィーにより標準ポリスチレン若しくはポリエチレングリコールの検査検を利用して測定した数平均分子量から抑出したものである。

前紀のRとしては、炭素数1~4のアルキル基、フェニル基等があるが、金属水和物の顕熟性をより向上させるためにはフェニル基の比単を高くすることが呼ましい。水酸基と反応する官能基としては、シラノール基、炭素数1~4のアルコキシル基、炭素数1~4のアシルオキシ基、塩業等の臭薬以外のハロゲン等がある。

[0000]

本発明おけるシリコーン肌合体は、一般式(1)

(代1)

R'nSiX4-n (1)

(式中Xは、塩茶等の臭素以外のハロゲン又は一〇Rを示し、ここで、Rは炭素数1~4のアルキル基、レキル基、炭素数1~4のアルキルカルポニル基を示し、R′は炭素数1~4のアルキル基、フェニル基等の有機基、nは0~2の整数を意味する)で表されるシラン化合物を加水分解、加路合させて得ることができる。

[0010]

前記一般式(1)で表されるシラン化合物は、具体的には

(4E2)

Si (OCH3) 4. Si (OC2H5) 4.

Si (OC, H,) ,, Si (OC, H,)

**尊のテトラアルコキシシランなどの4官能性シラン化合物(以下、シラン化合物における官能性とは、解合反応性の官能基を有することを意味する。)、** 

(43)

H,CSi (OCH,), H,C,Si (OCH,), H,C,Si (OCH,), H,C,Si (OCH,), H,CS i (OC,H,) , H,C,S i (OC,H,) ,

H, C, S i (OC, H, ), H, C, S i (OC, H, ),

 $H_1CS$  i  $(OC_3H_7)$  ,  $H_5C_2S$  i  $(OC_3H_7)$  ,

H,C,S i (OC,H,) , H,C,S i (OC,H,) ,

H<sub>3</sub>CS i (OC<sub>4</sub>H<sub>9</sub>) y, H<sub>5</sub>C<sub>2</sub>S i (OC<sub>4</sub>H<sub>9</sub>) y, H<sub>7</sub>C<sub>3</sub>S i (OC<sub>4</sub>H<sub>9</sub>) y, H<sub>7</sub>C<sub>3</sub>S i (OC<sub>4</sub>H<sub>9</sub>) y,

**勢のモノアルキルトリアルコキシシラン、** 

4)

PhSi (OCH,) , PhSi (OC,H,) ,

PhSi (OC,H,) , PhSi (OC,H,) ,

(ただし、Phはフェニル基を示す。以下同様)

巻のフェニルトリアルコキシシラン、

(化5)

(H,CCOO),SICH, (H,CCOO),SIC,II,

(H,CCOO) ,S i C,H, (H,CCOO) ,S i C, II,

苧のモノアルキルトリアシルオキシシラン

(46)

Cl,SiCH, Cl,SiC,H,

Cl,SiC,H,, Cl,SiC,H,

**尊のモノアルキルトリハロゲノシランなどの3官能性シラン化合物、** 

[467]

(H,C),Si (OCH,), (H,C,),Si (OCH3),

 $(H_1C_j)_2$ Si  $(OCH_j)_2$ ,  $(H_gC_4)_2$ Si  $(OCH_j)_2$ ,

(H3C) 1S i (OC, H3) 1. (H1C1) 1S i (OC, H3) 1.

(H,C<sub>1</sub>), Si (OC<sub>2</sub>H<sub>3</sub>), (H<sub>9</sub>C<sub>4</sub>), Si (OC<sub>2</sub>H<sub>3</sub>), (H<sub>3</sub>C) zsi (OC<sub>2</sub>H<sub>3</sub>), (H<sub>3</sub>C) zsi (OC<sub>3</sub>H<sub>3</sub>),

 $(H_1,C_3)$  , S i  $(OC_3H_7)$  ,  $(H_9C_4)$  , S i  $(OC_3H_7)$  ,

 $(H_1C)$  , S i  $(OC_4H_9)$  ,  $(H_1C_2)$  , S i  $(OC_4H_9)$  ,  $(H_7C_4)$  , S i  $(OC_4H_9)$  ,  $(H_9C_4)$  , S i  $(OC_4H_9)$  ,

勢のジアルキルジアルコキシシラン、

(468)

Ph2Si (OCH,) , Ph2Si (OC,H,)

**尊のジフェニルジアルコキシシラン、** 

(48.9)

(H<sub>3</sub>CCOO) ,S i (CH<sub>3</sub>) <sub>1</sub>, (H<sub>3</sub>CCOO) ,S i (C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>) <sub>1</sub>, (H<sub>3</sub>CCOO) ,S i (C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>) <sub>1</sub>,

乾のジアルキルジアシルオキシシラン、

[(610)

C1,Si (CH,) , C1,Si (C,H,) ,

C1,S1 (C,H,) , C1,S1 (C,H9) ,

箏のアルキルジハロゲノシランなどの2官能性シラン化合物がある。

(0011)

本発明に用いられる前配一般式(1)で表されるシラン化合物としては、4官能性シラン化合物又は3官能性シラン化合物、2官能性シラン化合物のいずれか若しくはその混合物が適宜使用される。特に耐熱性向上のためには、フェニル基を有するフェニルトリアルコキシシラン化合物やジフェニルジアルコキシシラン化合物を用いることが好ましく、これら化合物の使用混としては、総シラン化合物に対して好ましくは、5~100モル%の割合で使用され、特に好ましくは、50~100モル%の割合で使用され、特に好ましくは、50~100モル%の割合で使用され、特に

[0012]

本発明におけるシリコーン皿合体は、前記した一般式 (1) で表されるシラン化合物を加水 分解、重結合して製造されるが、このとき、触媒としては、塩酸、硫酸、リン酸、硝酸、フッ酸等の無機酸、シュウ酸、マレイン酸、スルホン酸、半酸等の有機酸を使用することが好ましく、アンモニア、トリメチルアンモニウムなどの塩基性触媒を用いることもできる。これら触

媒は、一般式(1)で表されるシラン化合物の指に応じて適当原用いられるが、卯適には一般式(1)で表されるシラン化合物1モルに対し0. 0 0 1  $\sim 1$ . 0 モルの範囲で用いられる。

[0013]

ı,°

また、この反応に称して、水が存在させられる。水の鼠も適宜状められるが、多すぎる場合には蟄布液の尿存安定性が低下するなどの問題があるので、水の鼠は、一般式 (1) で安されるシラン化合物が有する加水分解性基 (例えばアルコキシル基等) 1モルに対して、0~5モルが好ましく、0.5~2モルの範囲とすることがより好ましい。

[0014]

また、上記の加水分解・直報合は、落垛中で行うことが写ましい。落煤としては特に限定するものではい。シリコーン重合体の反応は、シラン化合物と極級、水、溶媒を適宜配合・股件して得られるが、その際のシラン化合物の遺皮や反応温度、反応時間等は特に限定するもでは、

[0015]

これらシリコーン直合体は、金瓜水和物の表面を投って金瓜水和物が持っている水をリリースする温度を向上させるはたらきがある。道常、金瓜水和物が水をリリースする温度は、金瓜水和物を単独で加熱減重や示差走査熱阻性、熱分解ガスクロマトグラフィ等で調定することができる。水をリリースする温度は金属水和物の種類や形状等により大きく異なるが、金属水和物として水酸化アルミニウムを用いた場合には、上記シリコーン直合体で処理することにより数でから数十で高くなる。

[0016]

また本発明では、シリコーン正合体以外に各種カップリング剤物を併用してもよい。カップリング剤としてはシラン系カップリング剤やチタネート系カップリング剤等があり、シラン系カップリング剤としては、一般にエポキシシラン系、アミノシラン系、カチオニックシラン系、ピニルシラン系、アクリルシラン系、メルカプトシラン系及びこれらの複合系等がある。

本発明で用いる樹脂は以染を含まないものであれば特に限定されず、例えばエボキシ樹脂系、ボリイミド樹脂系、トリアジン樹脂系、フェノール樹脂系、メラミン樹脂系、これら樹脂の変性系等が用いられる。また、これらの樹脂は2種類以上を併用してもよく、必要に応じて各種硬化剤、硬化促進剤等を使用し、これらを済剤溶液として配合してもかまわない。

# [0018]

**樹脂を用いる場合には、ジシアンジアミド、ジアミノジフェニルメタン、ジアミノジフェニル** スルフォン,無水フタル酸,無水ビロメリット酸,フェノールノポラックやクレゾールノポラ ック等の多官能性フェノール等をあげることができる。これら硬化剤は何種類かを併用するこ とも可能である。促進剤の租類や配合鼠は特に限定するものではなく、例えばイミダゾール系 化合物,有機リン系化合物,第3級アミン,第4級アンモニウム塩等が用いられ,2種類以上 **硬化剤としては,従来公知の種々のものを使用することができ,例えば樹脂としてエポキシ** を併用してもよい。

### [0.019]

これら樹脂材料及び金周水和物,シリコーン重合体等を常釈してワニス化するためにしばし ば溶剤が用いられる。この溶剤は特に限定はなく、例えばアセトン、メチルエチルケトン、ト ルエン,キシレン,メチルイソブチルケトン,酢酸エチル,エチレングリコールモノメチルエ ーテル、N,Nージメチルホルムアミド,メタノール,エタノール等があり,これらは何種類 かを程合してもよい。また,ワニスの間形分徴度は特に制限はなく,樹脂粗成や無機充填剤の ⑪회及び配合肌等により適宜変更できるが,50重肌%~85重肌%の範囲が好ましい。50 **虹鼠Sより低いとワニス粘度が低く,プリプレグの樹脂分が低くなりすぎ,8 5 虹鼠Sより高** いとワニスの増粘等によりプリプレグの外収等が落しく低下しやすい。

# [0020]

ワニス化する際の金属水和物の装面処型方法は特に限定されず,上記シリコーン重合体等を 予め処理した金属水和物を使用したり,ワニス化する際に樹脂や金属水和物と一緒に配合した り,予めシリコーン重合体等が入っている処理液中に金属水和物を入れて視体処理後,そのま まワニス化してもかまわない。

### [0021]

前記各成分を配合して得たワニスは,基材に含没させ,乾燥炉中で80℃~200℃の範囲 で乾燥させることにより、印刷配料板用プリプレグを得る。基材としては、金周箔張り積層板 や多周印刷配製板を製造する際に用いられるものであれば特に制限されないが,通常離布や不 ポロン,シリカアルミナガラス,シリカガラス,チラノ,炭化ケイ茶,窒化ケイ茶,ジルコニ ア等の無機繊維やアラミド,ポリエーテルエーテルケトン,ポリエーテルイミド,ポリエーテ 機布等の繊維基材が用いられる。繊維基材としては、たとえばガラス、アルミナ、アスペスト、

ルサルフォン,カーボン,セルロース等の有機繊維等及びこれらの湿抄系があり,特にガラス 繊維の緻布が好ましく用いられる。

-,-

本発明で用いるブリブレグは,150℃~200℃,1.0MPa~8.0MPa程度の範 **聞で加熱加圧して金属張符層板や多層印刷配線板を製造することに用いられる。** 

# [0023]

### (作川)

以上で述べた本発明によれば、金属水和物とシリコーン重合体を併用することにより積層板 とした場合に,臭素化合物を使用しない樹脂組成物を用いても頻燃性が発現でき,金属水和物 を配合したことによる耐熱性の低下も抑えることが可能となる。

# [0024]

### [实施例]

以下、本発明の実施例について説明する。

### [0025]

### 实施例 1

**規枠装置,コンデンサ及び温度計を備えたガラスフラスコに,テトラメトキシシランを40** 8, メタノールを93g配合した裕液に, 酢酸を0, 47g, 蒸削水を18.9g配合後50℃ で8時間脱搾し、シリコーン重合体を合成した。得られたシリコーン重合体のシロキサン繰り返 し単位の平均は20であった。これにメチルエチルケトンを加えて、関形分25重畳%のシリコ -ン重合体溶液を作製した。 このシリコーン蛋合体溶液を用いて,以下に示す樹脂及び金属水和物とメチルエチルケトン を加えて関形分70重闘%のワニスを作製した。

ピスフェノールA型エポキシ樹脂

(油化シェルエポキシ製 邸1001, エポキシ当景:466)

オルソクレゾールノボラック型エボキシ樹脂 70重原部

(住友化学製 ESCN-195, エポキシ当畳: 195)

5 重訊部 ジシアンジアミド 0.5 原原部 2-エチルー4-メチルイミダゾール

155瓜鼠鄉 水酸化アルミニウム

(住友化学製 CL310)

シリコーン重合体溶液 (25 重要%)

4 近瓜部

[0026]

実施例1と同様に、トリメトキシメチルシランを40g、メタノールを93g配合した溶液に、 酢酸を0.53g、蒸倒水を15.8g配合後50℃で8時間脱作し、シリコーン十号体を合成 した。得られたシリコーン重合体のシロキサン做り返し単位の平均は15であった。これにメチ ルエチルケトンを加えて、作型した固修分25重畳%のシリコーン重合体溶液を用いて、実施例 1と同様にワニスを作製した。

[0027]

灾施例3

実施例1と同様に、ジメトキシジメチルシランを20g、テトラメトキシシランを25g、メタノールを105g配合した裕裕に、酢酸を0.60g、蒸倒水を17.8g配合後50℃で8時間収炸し、シリコーン重合体を合成した。得られたシリコーン重合体のシロキサン税り返し単位の平均は30であった。これにメチルエチルケトンを加えて作製した固形分25重畳%のシリコーン直合体溶液を用いて、実施例1と同様にワニスを作製した。

[0028]

实施例4

実施例1と同様に、トリメトキシメチルシランを20g、テトラメトキシシランを22g、メタノールを98g配合した搭被に、酢酸を0.52g、蒸倒水を18.3g配合後50℃で8時間段件し、シリコーン斑合体を合成した。得られたシリコーン正合体のシロキサン殻り返し単位の平均は25であった。これにメチルエチルケトンを加えて作製した固形分25重配%のシリコーン狙合体落液を加いて、実施例1と同様にワニスを作製した。

[0029]

实施例5

実施的1と同様に、ジメトキシジメチルシランを10g,トリメトキシメチルシランを10g,テトラメトキシシランを20g,メタノールを93g配合した潜縦に、耐酸を0.52g,蒸留水を16、5g配合後50℃で8時間脱杵し、シリコーン頂合体を合成した。得られたシリコーン瓜合体のシロキサン繰り返し単位の平均は23であった。これにメチルエチルケトンを加えて

作製した固形分25近畳%のシリコーン近合体溶液を用いて、実施例1と同様にワニスを作製し

ψ.

-,-

[0030]

英施例6

集権例1と同様に、テトラエトキシンランを40g、メタノールを93g配合した済後に、作職を0.34g、蒸倒水を13.8g配合後50℃で8時間設作し、シリコーン近合体を合成した。得られたシリコーン近合体のシコキサン繰り返し単位の平均は19であった。これにメチルエチルケトンを加えて作製した固形分25重混%のシリコーン近合体落液を用いて、実施例1と同様にワニスを作製した。

[0031]

実施例7

実施例1と同様に、ジフェニルジメトキシシランを40g、メタノールを10g配合した溶液に、酢酸を0.20g、蒸配水を6.0g配合後25℃で1時間原作し、シリコーン近合体を合成した。 ゆられたシリコーン近合体のシロキサン緑り返し単位の平均は2であった。これにメチルエチルケトンを加えて作製した固形分25重散%のシリコーン近合体溶液を用いて、実施例1と同様にフニスを作戦した。

[0032]

实施例8

実施例7と同様に、ジフェニルジメトキシシランを40g、メタノールを10g配合した裕裕に、酢酸を0.20g、蒸留水を6.0g配合後50℃で8時間段件し、シリコーン重合体を合成した。得られたシリコーン重合体のシロキサン様0返し単粒の平均は8であった。これにメチルエチルケトンを加えて作製した固修分25重鼠%のシリコーン重合体浴液を用いて、炎筋例1と同様にフニスを作製した。

[0033]

灾施例9

実施例1と同様に、フェニルトリメトキシシランを40g、メタノールを10g配合した溶液に、酢酸を0.24g、蒸倒水を11.0g配合後50℃で8時間脱炸し、シリコーン重合体を合成した。得られたシリコーン重合体のシロキサン繰り返し単位の平均は12であった。これに

メチルエチルケトンを加えて作収した間形分25瓩畳%のシリコーン肌合体溶液を用いて, 実施例1と同様にワニスを作収した。

--\_:

[0034]

実施例10

実施例1と同様に、ジフェニルジエトキシシランを40g,メタノールを10g配合した格液に、酢酸を0.18g,蒸留水を5.5g配合後50℃で8時間現作し、シリコーン重合体を合成した。得られたシリコーン重合体のシロキサン繰り返し単位の平均は10であった。これにメチルエチルケトンを加えて作変した固形分25重損%のシリコーン重合体格被を用いて、実施例1と同様にワニスを作変した。

[0035]

灾施例11

実施例1と同様に、フェニルトリエトキシシランを40g、メタノールを10g配合した溶液に、酢酸を0、20g、蒸倒水を9、0g配合後50℃で8時間境件し、シリコーン面合体を合成した。得られたシリコーン面合体のシロキサン繰り返し単位の平均は9であった。これにメチルエチルケトンを加えて作取した固修分25重肌%のシリコーン重合体溶液を用いて、実施例1と同様にワニスを作取した。

[0036]

奖施例12

実施倒1と同様に、ジフェニルジメトキシシランを20g、テトラメトキシシランを20g、イタノールを10g配合した溶液に、酢酸を0.25g、紫쮬水を12.5g配合後50℃で8時間境件し、シリコーン重合体を合成した。得られたシリコーン重合体のシロキサン繰り返し単位の平均は15であった。これにメチルエチルケトンを加えて作製した固修分25重監%のシリコーン重合体溶液を用いて、実施例1と同様にワニスを作製した。

[0037]

实施例13

実施例1と同様に、ジフェニルジメトキシシランを20g,ジメトキシジメチルシラン20g,メタノールを10g配合した搭被に、酢酸を0.2gg,蒸削水を9.0g配合後50℃で8時間投炸し,シリコーン重合体を合成した。得られたシリコーン重合体のシロキサン機り返し単位

の平均は8であった。これにメチルエチルケトンを加えて作製した関形分25面間%のシリコーン重合体格液を用いて、実施例1と同様にワニスを作製した。

[0038]

実施例14

実施例1と同様に,ジフェニルジメトキシシランを20g,トリメトキシメチルシラン20g,メタノールを10g配合した幹液に,酢酸を0.25g,蒸쮬水を11.0g配合後50でで8時間境枠し,シリコーン蛋合体を合成した。得られたシリコーン蛋合体のシロキサン殻り返し単位の平均は10であった。これにメチルエチルケトンを加えて作製した固形分25重配%のシリコーン重合体脊液を加いて,実施例1と同様にフェスを作製した。

[0039]

实施例15

変施例1と同様に、ジフェニルジメトキシシランを20g、フェニルトリメトキシシラン20g、メタノールを10g配合した裕液に、酢酸を0.30g、蒸쮬水を5.9g配合後50℃で8時間境件し、シリコーン重合体を合成した。得られたシリコーン重合体のシロキサン繰り返し単位の平均は6であった。これにメチルエチルケトンを加えて作製した関形分25重畳%のシリコーン重合体溶液を加いて、変施例1と同様にフニスを作製した。

[0040]

实施例16

実施倒7で得られたシリコーン重合体合成液に、シランカップリングがとしてァーグリシドキシプロピルトリメトキシンラン(商品名:A-187、日本コニカー・(株) 製) とメチルエチルケトンを加えて作製した団形分25.近間%(シリコーン重合体:A-187=50;50)のシリコーン重合体溶液を用いて、実施例1と同様にワニスを作型した。

[0041]

実施例17

実施例7で得られたシリコーン近合体合成液に、チタネートカップリング剤としてイソプロピルトリス (ジオクチルパイロホスフェート) チタネート (所品名: KR46B, 味の茶(株) 製) とメチルエチルケトンを加えて作製した、固形分25 近景% (シリコーン近合体: S2-6032=50:50) のシリコーン近合体浴液を用いて、実施例1と同様にウニスを作製した。

[0042]

灾施例18

-,-

金属水和物として水酸化アルミニウムの代わりに水酸化マグネシウムを用いた以外は,実施例7と同様にワニスを作製した。

[0043]

实施例19

**金瓜水和物として水酸化アルミニウムの代わりに水酸化カルシウムを用いた以外は、実施例7と同様にワニスを作製した。** 

[0044]

实施例20

金属水和物として水酸化アルミニウム100重畳網と水酸化マグネシウム55重畳網を用いた以外は、実施例7と同様にワニスを作製した。

[0045]

災施例21

エポキシ樹脂としてオルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂を100 直鼠部(住友化学型 ESCN-195, エポキシ当島:195)としジシアンジアミドの代わりにフェノールノボラック樹脂を55重鼠網(日立化成工業型 HP-850N, 水酸基当品:108)とした以外は、実施例7と同様にフニスを作製した。

[0046]

实施例22

水酸化アルミニウムの配合品を230項目部とした以外は、実施例7と同様にワニスを作数

[0047]

灾施例23

実施的7で得られたシリコーン近合体にメタノールを加えて作製した固形分3 重畳%のシリコーン近合体処理液に実施的2 1 と同肌の水酸化アルミニウムを入れて2 5 ℃で 1 時間腹枠処理袋, 8 0 ℃で 3 時間乾燥させたシリコーン近合体処理水酸化アルミニウムを用いて,実施約2 1 と同様にワニスを作製した。

[0048]

实施例24

実施例7で得られたシリコーン近合体にメチルエチルケトンを加えて作致した同形分5 頂 置%のシリコーン近合体処理被に実施例2 1 と同臣の水酸化アルミニウムを入れて25 でで1 時間脱搾処理後、その処理裕被を用いて実施例2 1 と同様にワニスを作致した。

[0049]

比較例1

実施例1のワニスにシリコーン瓜合体溶液を配合せずに,ワニスを作製した。

[0800]

比較例2

実施倒1のシリコーン重合体の代わりにァーグリシドキシプロビルトリメトキシシラン(消品名:A-187,日本ユニカー(株)製)を1重債幣とした以外は、実施例1と同様にワニスを作製した。

[0051]

比較包3

実施倒1のシリコーン近合体の代わりにイソプロピルトリス (ジオクチルパイロホスフェート) チタネート (商品名:KR46B, 味の茶(株) 製)を1.近京部とした以外は, 災陥例1.と同様にワニスを作製した。

[0052]

比較例4

実施例7のシリコーン重合体の代わりに、ジフェニルジメトキシシラン化合物を1重畳部配合した以外は、実施例7と同様にワニスを作製した。

[0053]

実施例1~24及び比較例1~4で作製したワニスを厚さ約0. 1mmのガラス布(#2116, E-ガラス)に含複後. 150℃で3~10分加熱乾燥して樹脂分43重品%のプリプレグを得た。これらプリプレグ4枚を重ね,その両側に厚みが18 μmの解稿を重ね,170℃,90分,4.0MPaのプレス条件で両面解張相層板を作製した。

[0054]

得られた両面網張拍母板について、蜒燃性、耐熱性、加熱減損を評価した。その結果を表1 に示す。

[0055]

試験方法は以下の通りである。

**麹烙性:金面エッチングした積層板を用いて,UL94規格の垂直試験により評価した。** 

**耐熱性:50mm×50mmに切断した両面解張位面板を用いて,260℃及び288℃の格** 

掛はんだにフローとした際に積層板がふくれるまでの時間を測定した。

[0056]

以上の結果から、次のことが分かる。

**実施例1~24は,UL94V-0を達成し,260℃の耐熱性及び288℃での耐熱性が** 

良好である。

[0057]

[発明の効果]

本発明の樹脂組成物により作製した積層板は、呉素を含有せずに攤燃性を発現し、かつ優れ

た耐熱性を有する。

表 積層板の特性評価結果

項目	-	実施例1	実施例1 実施例2 実施例3 実	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	実施例8	実施例9	施例4 実施例5 実施例6 実施例7 実施例8 実施例9 実施例10 実施例11 実施例12 実施例13	実施例11	実施例12	実施例13
金属水和物量	%10A	43	43	43	43	43	43	43	43	43	43	43	43	43
難燃性	最大	7.0	8.3	8.0	8.5	8.2	7.6	4.8	3.9	5.0	5.1	6.0	5.5	6.5
(8)	年本	4.6	4.9	4.9	4.7	4.0	4.8	3.3	2.4	4.2	3.0	4.3	3.9	4.5
耐熱性	260%	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300
(s, 70-k)	2882	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300

項目		実施例14 実施の	実施例15	例15 実施例16 実施例17	実施例17	実施例18 実施例19	実施例19	実施例20	実施例21	実施例21 実施例22 実施例23 実施例24	実施例23	実施例24
金属水和物量	%10v	43	43	43	43	44	44	43	43	43	43	43
難燃性	最大	6.0	6.3	4.9	5.0	4.0	7.5	4.3	4.1	3.0	4.6	4.1
(s)	平均	4.1	4.2	2.8	3.0	2.2	4.9	2.9	2.8	1.5	3.0	2.6
耐熱性	260%	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300
(s, 70-k)	288C	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300

項目		比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5
金属水和物量	%10v	43	43	43	43	6
難燃性	最大	15.5	13.6	14.8	11.5	全焼
(8)	体本	8.6	8.3	9.0	6.0	全焼

						1.
耐熱性	260°C	150	180	144	193	>300
(s, 70-k)	288°C	25	47	39	55	>300

試験方法は以下の通りである。

**難燃性:全面エッチングした積層板を用いて,UL94規格の垂直試験により評価した。** 

耐熱性:50mm×50mmに切断した両面解張粒酚板を用いて,260℃及び288℃の脊機はんだにフローとした際に铅酚板がふくれるまでの時間を測定した。

[0056]

以上の結果から、次のことが分かる。

**炎施例1~24は,UL94V-0を達成し,260℃の耐熱性及び288℃での副熱性が** 

以外である。

[0057]

[発明の効果]

本発明の樹脂和成物により作奨した祝爵板は、臭素を含有せずに顕燃性を発現し、かつ優れ

た耐熱性を有する.

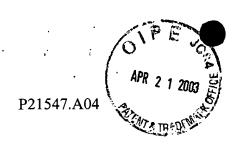
表 積層板の特性評価結果

項目		実施例1	実施例1 実施例2 実施例3	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	実施例8	実施例9	施例4 実施例5 実施例6 実施例7 実施例8 実施例9 実施例10 実施例11 実施例12 実施例13	実施例口	実施例12	実施例13
金属水和物量	v01%	43	43	43	43	43	43	43	43	43	43	43	43	43 -
難燃性	最大	7.0	8.3	8.0	8.5	8.2	7.6	4.8	3.9	5.0	5.1	6.0	5.5	6.5
(8)	好址	4.6	4.9	4.9	4.7	4.0	4.8	3.3	2.4	4.2	3.0	4.3	3.9	4.5
耐熱性	2092	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300
(s, 70-k)	288°C	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300

項目		実施例14	実施例15	実施例14 実施例15 実施例16 実施例17	実施例17	実施例18 実施例19 実施例20 実施例21 実施例22	実施例19	実施例20	実施例21	実施例22	実施例23 実施例24	実施例24
金属水和物量	%10A	43	43	43	43	44	44	43	43	43	43	43
難燃性	最大	6.0	6.3	4.9	5.0	4.0	7.5	4.3	4.1	3.0	4.6	4.1
(s)	本均	4.1	4.2	2.8	3.0	2.2	4.9	2.9	2.8	1.5	3.0	2.6
耐熱性	260°C	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300
(s, 70-k)	288C	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300	>300

項目		比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5
金属水和物量	%10A	43	43	43	43	6
難燃性	最大	15.5	13.6	14.8	11.5	全焼
(8)	好水	8.6	8.3	9.0	6.0	全焼

耐熱性	260°C	150	180	144	193	>300
(s, 70-k)	288°C	25	47	39	55	>300



# **EXHIBIT B**

APR 24 mg

G-0a. doc Property

File Information

File Outline

Detailed Information

File Construction

User Set Up

Preparation Date:

20:09:00

Printed Date: Access Date: Update:

14:16:38 cbruary 20, 2003

16:27:48 15:11:00

Updated by: Mozomu TAKANO

Revised Number: 36

Edition Time: 1375 minutes

-

Number 12655 12691 13148 475 236 Number of Characters including Space Items of Detailed Information Number of Paragraphs: Number of Characters: Number of Pages: Number of Lines: Number of words: Detailed Information (S)

-----



TO TO

# **EXHIBIT C**

### Partial Translation of Draft Specification

#### On page 2, line 1 to page 3, line 6

[Document] Specification

[Title of the Invention] Incombustible Resin Composition Excluding Bromine Compound, and Laminated Plate and Printed. Wiring Board Using the Same

[Claims]

• ; •

[Claim 1] An incombustible resin composition, or a laminated plate or a printed wiring board using the composition, wherein the composition comprising: at least 10 % by volume of metal hydrate; and silicone polymer, and excluding a bromine compound.

[Claim 2] The incombustible resin composition, or a laminated plate or printed wiring board using the composition of claim 1, wherein the metal hydrate is pre-treated with the silicone polymer.

[Claim 3] The incombustible resin composition, or a laminated plate or printed wiring board using the composition of claim 1, wherein the composition is prepared by mixing a processing solution containing a silicone polymer with a metal hydrate, stirring and then mixing resin components to the solution.

[Claim 4] The incombustible resin composition, or a laminated plate or printed wiring board using the composition of claim 1, wherein the metal hydrate includes aluminum hydroxide.

[Claim 5] The incombustible resin composition, or a laminated plate or printed wiring board using the composition of claim 1, 2 or 3, wherein the metal hydrate includes aluminum hydroxide.

[Claim 6] The incombustible resin composition, or a laminated plate or printed wiring board using the composition of claim

1, 2 or 3, wherein the metal hydrate includes calcium hydroxide. [Claim 7] The incombustible resin composition, or a laminated plate or printed wiring board using the composition of claim 1, 2 or 3, wherein the metal hydrate is aluminum hydroxide. [Claim 8] The incombustible resin composition, or a laminated plate or printed wiring board using the composition any one of claims 1-4 and 7, wherein the aluminum hydroxide has particle diameter of 5 micro meter or less in average.

[Claim 9] The incombustible resin composition, or a laminated plate or printed wiring board using the composition any one of claims 1-8, wherein the silicone polymer as surface treatment agent has a silanol group which is able to react with a surface of a metal hydroxide.

[Claim 10] The incombustible resin composition, or a laminated plate or printed wiring board using the composition any one of claims 1-9, wherein the silicone oligomer has the 2-100 recurring unit of siloxane.

[Claim 11] The incombustible resin composition, or a laminated plate or printed wiring board using the composition any one of claims 1-10, wherein the silicone polymer has a phenyl group. [Claim 12] The incombustible resin composition, or a laminated plate or printed wiring board using the composition any one of claims 1-12, wherein the silicone polymer has at least one phenyl group per siloxane unit.

#### On page 5, line 4 to page7, line 24

[8000]

A silicone polymer in the present invention contains at least one kind of siloxane unit selected from bifunctional siloxane unit ( $R_2SiO_{2/2}$ ), trifunctional siloxane unit ( $RSiO_{3/2}$ ) (in the formula, R represents an organic group, R groups in the

silicone oligomet may be identical with each other or different.), and tetrafunctional siloxane unit  $(SiO_{4/2})$ . Moreover, the silicone polymer has one functional group or more which reacts with hydroxyl group at the end of it. It is preferable that the degree of polymerization is 2 to 7000, more preferably 2 to 100, particularly preferable the degree of polymerization is  $\frac{2}{2}$  to  $\frac{70}{2}$ . Here, the degree of the polymerization is calculated from the number average molecular weight measured by utilizing calibration curve of the standard polystyrene or polyethylene glycol by its polymer molecular weight (in the case of low degree of polymerization) or gel permeation chromatography.

As the R, an alkyl group having 1 to 4 pieces of carbon atoms or an aromatic group such as phenyl group is preferably selected. However, in order to further enhance the heat resistance, it is more preferable that the ratio of aromatic groups is raised. As the functional group reacting with hydroxyl group, silanol group, alkoxyl group having 1 to 4 pieces of carbon atoms, acyloxy group having 1 to 4 pieces of carbon atoms, halogen such as chlorine or the like except for bromine are listed.

[0009]

A silicone polymer of the invention can be obtained by hydrolyzing and performing the polycondensation of silane compound represented by the following general formula (I).

[Formula 1]

R'nSiX4-n (I)

(In the formula, X represents halogen such as chlorine except for bromine, or -OR, where R represents alkyl group having 1 to 4 pieces of carbon atoms or alkyl carbonyl group having 1 to 4 pieces of carbon atoms, R' represents organic groups such as alkyl group having 1 to 4 pieces of carbon atoms or phenyl group, n denotes an integer of 0 to 2).

[0010]

Silane compounds represented by the general formula (I) are concretely,

4 functionality silane compounds (hereinafter

```
functionality in the silane compound means that it has
functional group having condensation reaction) such as
tetraalkoxy silanes as follows:
   [Formula 2]
          Si(OCH_3)_4, Si(OC_2H_5)_4,
          Si(OC_3H_7)_4, Si(OC_4H_9)_4,
monoalkyl trialkoxy silanes as follows:
   [Formula 3]
         H_3CSi(OCH_3)_3, H_5C_2Si(OCH_3)_3,
         H_3C_3Si(OCH_3)_3, H_9C_4Si(OCH_3)_3,
         H_3CSi(OC_2H_5)_3, H_5C_2Si(OC_2H_5)_3,
         H_7C_3Si(OC_2H_5)_3, H_9C_4Si(OC_2H_5)_3,
         H_3CSi(OC_3H_7)_3, H_5C_2Si(OC_3H_7)_3,
         H_7C_3Si(OC_3H_7)_3, H_9C_4Si(OC_3H_7)_3,
         H_3CSi(OC_4H_9)_3, H_5C_2Si(OC_4H_9)_3,
         H_7C_3Si(OC_4H_9)_3, H_9C_4Si(OC_4H_9)_3,
phenyl trialkoxy silanes as follows:
   [Formula 4]
         PhSi(OCH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>, PhSi(OC<sub>2</sub>H<sub>5</sub>)<sub>3</sub>,
         PhSi(OC<sub>3</sub>H<sub>7</sub>)<sub>3</sub>, PhSi(OC<sub>4</sub>H<sub>9</sub>)<sub>3</sub>,
(where Ph represents phenyl group. Hereinafter, referred to
as the same as it is represented.)
monoalkyl triacyloxy silanes as follows:
   [Formula 5]
         (H<sub>3</sub>CCOO)<sub>3</sub>SiCH<sub>3</sub>, (H<sub>3</sub>CCOO)<sub>3</sub>SiC<sub>2</sub>H<sub>5</sub>,
         (H<sub>3</sub>CCOO)<sub>3</sub>SiC<sub>3</sub>H<sub>7</sub>, <math>(H<sub>3</sub>CCOO)<sub>3</sub>SiC<sub>4</sub>H<sub>9</sub>,
trifunctional silane compounds such as monoalkyl trihalogeno
silanes as follows:
   [Formula 6]
         Cl<sub>3</sub>SiCH<sub>3</sub>, Cl<sub>3</sub>SiC<sub>2</sub>H<sub>5</sub>,
         Cl<sub>3</sub>SiC<sub>3</sub>H<sub>7</sub>, Cl<sub>3</sub>SiC<sub>4</sub>H<sub>9</sub>,
Dialkyl dialkoxy silanes as follows:
   [Formula 7]
         (H_3C)_2Si(OCH_3)_2, (H_5C_2)_2Si(OCH_3)_2,
         (H_7C_3)_2Si(OCH_3)_2, (H_9C_4)_2Si(OCH_3)_2,
         (H_3C)_2Si(OC_2H_5)_2, (H_5C_2)_2Si(OC_2H_5)_2,
         (H_7C_3)_2Si(OC_2H_5)_2, (H_9C_4)_2Si(OC_2H_5)_2,
```

```
(H_3C)_2Si(OC_3H_7)_2, (H_5C_2)_2Si(OC_3H_7)_2,
       (H_7C_3)_2Si(OC_3H_7)_2, (H_9C_4)_2Si(OC_3H_7)_3,
       (H_3C)_2Si(OC_4H_9)_2, (H_5C_2)_2Si(OC_4H_9)_2,
       (H_7C_3)_2Si(OC_4H_9)_2, (H_9C_4)_7Si(OC_4H_9)_3,
diphenyl dialkoxy silanes as follows:
  [Formula 8]
       Ph_2Si(OCH_3)_2, Ph_2Si(OC_2H_5)_2,
Dialkyl dialkoxy silanes as follows:
  [Formula 9]
       (H_3CCOO)_2Si(CH_3)_2, (H_3CCOO)_2Si(C_2H_5)_2,
       (H_3CCOO)_2Si(C_3H_7)_2, (H_3CCOO)_2Si(C_4H_9)_2, and
bifunctional silane compounds such as alkyl dihalogeno silanes
as follows:
  [Formula 10]
       Cl_2Si(CH_3)_2, Cl_2Si(C_2H_5)_2,
       Cl_2Si(C_3H_7)_3, Cl_2Si(C_4H_9)_2.
       [0011]
```

As a silane compound represented by the general formula (I) of the present invention, any of tetrafunctional silane compound, trifunctional silane compound, bifunctional silane compound or their mixture is appropriately used. In order to enhance the heat resistance, it is preferable to use silane compound having an aromatic group. It is particularly preferable to use phenyl trialkoxy silane compound having a phenyl group and diphenyl dialkoxy silane compound. As a usage volume of the compound having a phenyl group, it is preferable that it is used at the ratio of 5 to 100 mol% with respect to the total silane compound. It is particularly preferable to use it at the ratio of 50 to 100 mol%.



# **EXHIBIT D**

Proper	ty transfer to the Porter		[ An attached 5] required to the	real ation, abstr	act, and tigure are
pepar	Confidential Suggest for Pate	it Application and Transfi	er - requirem 10 m	Rocantion N	<u>.</u>
7		[書(1) 兼 譲渡証	(国立)グループ以外の	人との 受付番号(知的財	
. \		NE TANK BOOK ME	共同発明の場合は、特   依頼書(2)にも記載し、		3 0
- 3 <u>- 2</u>		出部数 3部	て提出すること。		<b>展新</b>
9		1部 知的財産部用	<i>&gt;</i> <b>U</b>	能研	
. 1		1 部 - データ入力用兼連絡者控 1 部 - 評価連絡用兼発明者控	依頼書には、明細書、 図面を1部添付するこ		4、多外宫野
		4 4 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1		(在市	
Title		<b>一种加州</b>		許を受ける権利の持分が	
	和成约,及心无小七角1位	相图和,印刷图	考案等取扱規則](規第	618 号)第6条に規定す 立 グループ会社の発明	る「譲渡を証する書面」
	Compaind, and Laminated Plate and	aposition Excluding Bromine	こして、当社以外ので	<u>リンクルーノ芸任の発明</u> 当該登明者が属するか	有は、その特許を受け
			を証する書面」として担	、ヨ吸たがるか腐りる? P印の上提出致します。	ルーノーにへい 譲渡
	研究開発 Substrate Haterial Rear h 「日音等 例依頼(依頼)	Free Verbonsive to enviro		氏名番号 氏 名(フリ)	ガナ) 寄与率 譲渡印
pics of	research 口自発 凶依賴(依頼元	Meintal Propie	<b>冷</b> 要朝	80 Ja 14	
`	戦略テーマ ①非該当 □該当(名称:	)	発生明者	23969 Bases	(42) (50%) (量)
	適用製品 一		Main	つして(内線に対応	42) % 22
V [	Product (製品コード EOZC )	夏面から記入	Inventor /	28×27 1800 630	7127 30 (III
	国際特許分類 (例:B29C33/00)		共 //	36723 BE ELLE	2/201/ 20
	事業所 <b>分子</b> 好ル	事業部	la)	, /	/ / /
	権利帰属先 <b>安用</b> 負担部門 二一		現 明	( Mozomu TA	
発	内容を外部に発表する場合の外部発表	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	者不	7 Tomro Fuk	ADA
発明者記	12/無 □有 *外部発表日:平成	年 月 日	co-Inventor	(Masato Mi	YATA
記 入	(講演予稿集、雑誌、カタログ等が				
欄	*発表形式:学会、講演、雑誌、新聞、大	7タログ、販売、展示、外注			
	□無□有→□先にした		1. 新与率は、均等の 者合計が 100%に	場合を除き原則 10%きる マストうにする	♪みで、社内外全発明   
	国内優先権	・山水( : して、この出願を行う。		ループ会社の発明者はこの ループ会社の発明者はこの	の欄に記入、押印下さ!
	一・一・一・一・一・一・一・一・一・一・一・一・一・一・一・一・一・一・一・	して後日、別の出願を行		明者は、特許出願依頼書	
	j,		本書に添付下さい。	. 他 :	<u>z</u>
	この発明に関係の深い自社の特許出 願(特に出願後 10 か月以内の関連出願	h	************		
	があればその受付番号を記入)	出願公開が迫っているもの	の出願番号を記入→	•••••••••••••••••••••••••••••••••••••••	
	今後引続き関連発明を出願依頼する予定	□無 127有(時期 ///	2/工 , 件数	之 件	)
	この発明に関係の深い自社の文献	☑無 □有			
		特許番号,文献名等			
	│ 他社の類似技術 │ (この欄に記入のないものは先行技	特團平11-2176	617 Kg		
	術調査をしていないものとみなし、		素式,期間)	•••••	
	依頼元評価を B2 とする。)	PATOUS, PS		·····	
	審査請求 / □しない 四希望する		日本盟する(国名: X	OR BARA	
*	切現在製品・技術の改良			事業製品・技術の発明	
	課題の □業界、学会の有力課題 重要性 □新しい課題の発見	侵害発見の難度 <b>四</b> 困難 課長コメント	□容易(確認方法		)
(-4-	日その他				and the second second
頼	技術的 □未検討 □実験レベル				
元 上	実現性   図製品化レベル □自明   □単純で必然的	競合他社状況	C12 14 15 5-	مه و خواهد کار این	少之智(安研)
長記	霊 □仕様・規格の先取り	75742/154/3ah	. ,	LOBY. PEATIA,	14.7
依頼元上長記入欄				31(審査請求を行う予定	高野/
1144		部長職コメント(課長評価が入り		□□(公開技報に掲載)	101014
	1 <sup>1</sup> □ その他   製品化 図有 <del>  →</del> □試作段階		- W G (#2: Y BL/N)		
	計画 口無	<u> </u>	• • • • • • • • • • • • • • • • • • • •		
	特記事項				
	処理区分(知財部評価) ☑A(外国出	順を行う予定) □ B1(審査請求	ーーーー 状を行う予定) □B2(審		(公開技報に掲載)
知記	☑単独出顧 □共폓 (相手方			) PCT	
財入部欄	備考				-
H (2 1129)					15